

Title	Inelastic x-ray scattering study of plasmons in liquid alkali metals( Abstract_要旨 )
Author(s)	Kimura, Koji
Citation	Kyoto University (京都大学)
Issue Date	2015-03-23
URL	<a href="http://dx.doi.org/10.14989/doctor.k18778">http://dx.doi.org/10.14989/doctor.k18778</a>
Right	学位規則第9条第2項により要約公開; 許諾条件により全文は2015/07/06に公開(2015/09/08更新)
Type	Thesis or Dissertation
Textversion	ETD

( 続紙 1 )

京都大学	博 士 ( 理 学 )	氏名	木村 耕治
論文題目	Inelastic x-ray scattering study of plasmons in liquid alkali metals (非弾性X線散乱を用いた液体アルカリ金属におけるプラズモンに関する研究)		
(論文内容の要旨)			
<p>多体電子集団における相互作用の理解は学術的にも重要であるが、その微視的様相については未だ明らかになっていない。本論文は、金属元素の中でも最も電子ガスモデルを具現するアルカリ金属を対象として、その電子集団運動の素励起であるプラズモン挙動について研究したものである。これまで価電子密度の異なる種々の固体アルカリ金属に対し、そのプラズモン分散関係が、電子エネルギー損失分光(EELS)実験により測定されているが、比較的価電子密度が低い重アルカリ金属(Rb, Cs)のプラズモン分散については、電子ガスモデル予測との不一致が報告されている。この不一致の原因は、これまでバンド構造効果(電子-イオン相互作用に起因するプラズモン分散の変調)の影響であるとして理論的には解釈されてきた。しかし、実験的にこの効果の影響を調べた例はなく、Rb, Csのプラズモン分散の問題は未解決であった。申請者は、この問題に対し、液体状態におけるプラズモン測定を行うことによる解決を試みた。このアプローチは、結晶構造と不規則な構造では、価電子がイオン系から受けるポテンシャルの影響が異なることに着目したものである。</p> <p>申請者は、まず固体・液体Rbに対して、SPring-8の放射光を用いた非弾性X線散乱(IXS)実験(ビームラインBL12XU)を行い、プラズモンを観測した。熔融金属を安定に保持し、散乱実験の可能なサファイア製の試料容器(セル)を作製した。試料厚みを散乱実験に必要な最適値に制御したセルを用いることで、液体RbのIXS測定を実現するに至った。得られたスペクトルからプラズモン分散 <math>\hbar\omega_p(q)</math> を決定したところ、固体と液体で、密度変化だけでは説明できない差が観測された。<math>\hbar\omega_p(q)</math> は誘電関数 <math>\epsilon(q, \omega) = 0</math> で定義され、<math>\epsilon(q, \omega)</math> から融解による <math>\hbar\omega_p(q)</math> の変化を議論することができる。<math>\epsilon(q, \omega)</math> は電子遷移を反映することから、電子状態密度(DOS)が有用な情報となる。固体と液体のDOSを比較することにより、観測された <math>\hbar\omega_p(q)</math> の変化はバンド構造効果の低減に起因するものと解釈された。さらに別途実施した液体Csのプラズモン分散に関しても、融解に伴うバンド構造効果の低減から実験結果を説明し、固体Rb, Csにおけるバンド構造効果の寄与を実験的に示した。バンド構造効果の低減はプラズモン挙動が電子ガスモデルに近づくことを示唆するが、申請者はRb, Csの分散曲線の形状が融解に伴い電子ガス予測に近づくことも確認している。</p> <p>また、申請者は、固体・液体Rbのプラズモン線幅 <math>\Delta E_{1/2}(q)</math> を決定し、<math>q = 0</math> 付近で融解に伴う線幅の狭小化を見出した。さらに、長波長極限(<math>q = 0</math>)における線幅の理論式を用いた考察を行い、線幅の狭小化を定量的に再現した。特に、液体状態の線幅に関しては、液体の構造因子<math>S(q)</math>を取り入れ、本論文において定式化を行ったものである。融解に伴う線幅の狭小化は、Rbにおけるプラズモンが結晶格子よりもむしろ不規則な構造において、よく規定されることを示す。また、他のアルカリ金属に対して理論式を適用すると、融解による線幅の狭小化は、Rbに限らずアルカリ金属共通の特徴であることを予測した。<math>\hbar\omega_p(q)</math>で見出された、融解に伴い電子ガスの挙動に近づく傾向が、<math>\Delta E_{1/2}(q)</math> においても狭小化という形で現れていると考察している。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、アルカリ金属であるRb, Csを対象とし、その液体状態におけるプラズモン挙動を初めて明らかにしたものである。電子集団運動の素励起であるプラズモンは、典型的な電子の多体効果であり、相互作用を鋭敏に反映する。多体電子集団の物性は学術的にも重要であり、その背後にある微視的相互作用の理解に向けた、電子ガス理論をはじめとする多体電子理論の近年の進展は著しい。しかし、現実物質におけるプラズモン挙動に関しては、単体金属でさえ未解決の部分が多い。その意味で電子ガス近似がよく成り立つアルカリ金属の価電子プラズモン挙動の実験的研究は有意義である。これまで固体状態に対しては、電子エネルギー損失分光による測定例があるが、価電子密度の低いRbやCsなどの重アルカリ金属元素の分散関係が電子ガスモデルにより上手く説明できないという問題があり、いわゆるバンド構造効果として理論的には解釈されてきた。しかしながら、その実験的な検証はこれまでなされていなかった。本論文は、以上の背景のもと、プラズモン挙動を通じて価電子集団のダイナミクスを実験的に解明しようとする試みである。

申請者は、融解による構造の変化とプラズモン分散の相関という新たな視点でこの問題に取り組んだ。単体金属の熔融状態を利用すれば、比較的単純な系で構造を変化させることができ、バンド構造効果との関連の考察が可能となる。

液体状態のプラズモン測定はこれまで技術的に困難であり、要素技術の構築が必須であった。一方で、近年の放射光技術の高度化により、高輝度X線を利用した非弾性散乱が実験手法として確立されてきており、散乱波数の関数としてプラズモンエネルギーを精度よく測定することが可能となっている。申請者は、放射光を用いた非弾性X線散乱測定と、熔融金属を安定に保持することの可能な試料セル作製技術を組み合わせることに着目し、技術的課題を克服しながら必要な要素技術の構築を行い、それを成功させている。結果として、これまで実験的な難しさにより手が付けられてこなかった液体状態のアルカリ金属 (Rb, Cs) のプラズモン分散を、非弾性X線散乱を用いて初めて精度良く測定することに成功し、固液転移に伴う励起エネルギーおよび線幅の変化を明瞭に観測した。さらに、融解に伴う構造変化を取り入れた考察を行い、観測された分散関係および線幅の挙動が、バンド構造効果が融解に伴い低減していることで説明可能であることを示した。結果として、液体状態におけるプラズモン挙動が、より電子ガスの特徴をもったものであることが示された。液体状態の電子状態に着目することが、学術的にも重要な電子ガスの挙動を理解する上で有効であることを示した点で、礎としての意義も有する。このように、本論文は、液体金属における電子状態と構造の相関に関する新しい知見を与えるものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成26年12月22日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日：                      年                      月                      日以降